

TARTU ÜLIKOOL

Loodus- ja täppisteaduste valdkond

Füüsika Instituut

Lauri Kongas

**CS-137 JA K-40 AKTIIVSUSE KONTSENTRATSIOONIDE
MÄÄRAMINE EESTI RANNALIIVADES
GAMMASPEKTROMEETRIA ABIL**

Bakalaureusetöö (12 EAP)

Juhendaja:
Rein Koch, PhD

Tartu 2017

Infoleht/Abstract

Cs-137 ja K-40 aktiivsuse kontsentratsioonide määramine Eesti rannaliivades gammaspektromeetria abil

Cs-137 on sünteetiline radioaktiivne isotoop, mida eraldus atmosfääri suures koguses 20. sajandil nii tuumakatsetuste kui ka Tšernobõli tuumareaktori plahvatuse tagajärjel [1]. Selle lagunemisest tulenev gammakiirgus on potentsiaalne terviseoht [2]. Antud töö üks eesmärgi oli määrata Cs-137 gammaaktiivsuse kontsentratsioonid erinevates Eesti rannaliivades. Lisaks määrati antud liivades ka K-40 gammaaktiivsuste kontsentratsioonid. Uuritud rannaliivade keskmised Cs-137 ja K-40 gammaaktiivsuse kontsentratsioonid olid vastavalt 1,844 Bq/kg ning 271,78 Bq/kg.

CERCS: P220 Tuumafüüsika

Märksõnad: radioaktiivsus, gammakiirgus, gammaspektroskoopia, Cs-137, K-40, rannaliiv

Determination of the activity concentrations of Cs-137 and K-40 in Estonian beach sands using gamma spectrometry

Cs-137 is a synthetic radioactive isotope, which was emitted to the atmosphere in great quantity during the 20th century as a result of nuclear tests and the Chernobyl reactor explosion [1]. Gamma radiation from its gamma decay is a potential health hazard [2]. One of the aims of this thesis was to determine the gamma activity concentrations of Cs-137 in various Estonian beach sands. In addition, the gamma activity concentrations of K-40 in the given beach sands were determined. The average gamma activity concentrations for Cs-137 and K-40 in the studied beach sands were 1.844 and 271.78 Bq/kg, respectively.

CERCS: P220 Nuclear Physics

Keywords: radioactivity, gamma radiation, gamma spectroscopy, Cs-137, K-40, beach sand

Sisukord

Infoleht/Abstract	2
1 Sissejuhatus	5
2 Teoreetilised alused	6
2.1 Isotoobid	6
2.1.1 Cs-137	6
2.1.2 K-40	7
3 Varasemad tulemused	8
3.1 Radionukliidid Eesti pinnases ja kiirgusdoos	8
4 Meetodid	10
4.1 Liiva kogumine	10
4.2 Proovide ettevalmistamine	11
4.3 Proovide mõõtmine	12
4.4 Aktiivsuse kontsentratsioonide leidmine	12
4.5 Radioaktiivse proovi aktiivsuse kontsentratsiooni muutumine ajas	13
4.6 Mõõtemääramatused	13
4.7 Kalibratsioon	14
5 Tulemused ja analüüs	16
6 Tänuavaldused	25
Kokkuvõte	26
Summary	27
Viited	28

Peatükk 1

Sissejuhatus

Tšernobõli katastroofi tulemusel vabanes atmosfääri suur hulk Cs-137 [2]. Osa sellest kandus ka Eestisse. Kuna Cs-137 gammalagunemisest tingitud kiirgus on tervisele ohtlik, siis on oluline teada, milline on selle isotoobi gammaaktiivsus Eesti rannaliivades. Lühiduse huvides kasutatakse antud töös edaspidi gammaaktiivsuse asemel sõna aktiivsus.

Antud töö peaeesmärk on teha kindlaks, millised on Cs-137 ja K-40 aktiivsuse kontsentratsioonid Eesti rannaliivade pinnakihtides. Cs-137 reostuse ulatust Eestis on varasemalt uuritud, aga seda on vaja uuesti teha, et teada hetkeolukorda.

Uurimistöö tarbeks koguti liiva paljudest kohtadest üle Eesti, et võrrelda erinevate piirkondade liivade aktiivsusi. Kogutud liiv sõeluti ning erinevate terasuurustega liiv eraldati, et võrrelda erineva terasuurusega liivade aktiivsusi. Liiva uuriti gammaspektromeetria abil ning saadud andmete põhjal teostati arvutused ja analüüs, et nendest ekstraheerida kasulikud tulemid ning järeldused.

Peatükk 2

Teoreetilised alused

2.1 Isotoobid

2.1.1 Cs-137

Selle bakalaureusetöö jaoks on keskse tähtsusega tseesiumi radioaktiivne isotoop Cs-137. See isotoop on üks kurikuulsamaid tuumalagunemise produkte. Selle põhjuseks võib olla selle esinemine erinevates radioaktiivse reostuse intsidentides, nagu näiteks Tšernobõli ja Fukushima katastroofid [3]. See isotoop on ka paljude tuumarelvade katsetuste produktiks. Looduslikult seda isotoopi praktiliselt ei esine - tegemist on sünteetilise isotoobiga.

Cs-137 poolestusaeg on umbes 30 aastat [4]. Seetõttu püsib see looduses piisavalt kaua, et reostunud alad saaksid jääda reostunuks mitmeteks põlvkondadeks. Samal ajal on selle poolestusaeg piisavalt lühike, et isegi võrdlemisi väikesed kogused tekitavad potentsiaalselt ohtliku kiirgustaseme. Seetõttu võib lugeda Cs-137 ohtlikuks saasteaineks ja terviseriskiks.

Cs-137 beeta-laguneb, tootes ergastatud isomeeri Ba-137m. Ba-137m poolestusaeg on aga väga lühike - nimelt umbes 153 sekundit. See isotoop eraldab lagunedes gammaosakese energiaga 661 keV. Antud töö raames mõõdeti Cs-137 aktiivuse kontsentratsioonide arvutamiseks Ba-137m gammalagunemist. Kuna aga kogu Ba-137m lagunemisest tingitud gammakiirgus tuleneb Cs-137 gammalagunemisest ning Ba-137m poolestusaeg on väga lühike, siis võib Ba-137m gammalagunemise lugeda Cs-137 gammalagunemise indikaatoriks. [4, 5]

Cs-137 on ka keemiliselt reaktiivne, palju rohkem kui ükski tuumalagunemiste produktide hulgas olev siirdemetall. Kuna tseesium on leelismetall, on see väga elektropositiivne ning reageerib väga intensiivselt veega, moodustades hästi lahustuvaid Cs^+ ioone. Cs-137 reostuse levikut soodustab tseesiumisoolade hea vees lahustuvus.

Üks tuumakatastroof, mis illustreeris hästi Cs-137 ohtusid, oli Tšernobõli tuumajaama õnnetus aastal 1986. Reaktoris aset leidnud plahvatuse tulemusel paiskus atmosfääri suur hulk Cs-137. Atmosfääri paiskus arvestataval määral ka I-131, aga selle poolestusaeg on Cs-137 omast oluliselt lühem ning see lagunes kiiresti. Nii jäigi Cs-137 peamiseks kiirgustekitajaks Tšernobõli õnnetusest tulenevas reostuses. [6]

2.1.2 K-40

Teine nukliid, mis on selle töö jaoks suure tähtsusega, on K-40. See on kaaliumi radioaktiivne isotoop poolestusajaga $1.28 \cdot 10^9$ aastat. Võrreldes Cs-137-ga on see poolestusaeg oluliselt pikem. K-40 peamised lagunemise viisid on beetalagunemine (89.25%) ja lagunemine elektronhaardega Ar-40-ks, mille tulemusel eraldub gammaosake energiaga 1460 keV (10.55%). [7]

K-40 gammajoonele on väga lähedal Ac-228 gammajoon energiaga 1459 keV [8]. Selles töös neid kahte joont ei eraldatud. Eelduseks võeti, et Ac-228 gammajoon on üldiselt tunduvalt nõrgem K-40 gammajoonest.

Peatükk 3

Varasemad tulemused

3.1 Radionukliidid Eesti pinnases ja kiirgusdoos

Aastal 1994 ilmus ajakirjas Tehnika ja Tootmine Jaak Jõgi, Rein Kochi, Küllike Realo ning Enn Realo artikkel pealkirjaga "Radionukliidid Eesti pinnases ja kiirgusdoos" [9]. Artiklis käsitleti K-40, Cs-134, Cs-137, Th-228, Th-232, Ra-226, U-235 ja U-238 sisaldust Eesti pinnases. Antud töö jaoks on olulised artiklis kirjeldatud tulemused, mis on seotud Cs-137 ja K-40 esinemisega pinnases.

Artiklis kirjeldatud mõõtmiste käigus saadi Eesti pinnastes K-40 aktiivsuse kontsentratsioonideks väärtusi vahemikus 100 ja 1000 Bq/kg. Kõigi mõõdetud väärtuste aritmeetiliseks keskmiseks tuli 513 Bq/kg. Keskmisest suuremaks osutusid K-40 aktiivsuse kontsentratsioonid Järvamaa, Tartumaa ja Viljandimaa pinnastes. Selle põhjuseks pakuti artiklis välja kaaliumväetiste intensiivse kasutamise nimetatud piirkondades. [9]

Artiklis toodi ka välja, et peamiselt pärineb Eesti pinnastes olev Cs-137 kahest allikast. Nendeks on tuumakatsetused, mis kulmineerusid aastatel 1962-1963 ning Tšernobõli tuumakatastroof, mille produktid levisid Eestisse 1986. aasta kevadel. Tuumakatsetuste tulemusel õhku paiskunud Cs-137 ladestus põhjapoolkeral võrdlemisi ühtlaselt, aga Tšernobõlist pärit Cs-137 seda ei teinud - see omas väga ebaühtlast pindjaotust. Artiklis olid Cs-137 kohta välja toodud arvutatud eriaktiivsused ühikutes kBq/m^2 . Järgnevalt on toodud tabel keskmise ekvivalentdoosi võimsuse komponentide (nSv/h) kohta maakonniti, mis on koostatud artiklis oleva tabeli number 2 põhjal. Väärrib märkimist, et Cs-134 ja Cs-137 doosivõimsused on antud tabelis kokku liidetud. Maakonna nime järel on sulgudes maakonnast kogutud proovide arv. [9]

Kuigi tabelis on toodud Cs-134 ja Cs-137 doosivõimsuste summa, siis tasub arvestada sellega, et Cs-134 doosivõimsuse osakaal toodud väärtustes on väike. See tuleb välja artiklis toodud

Maakond	K-40 doosivõimsus (nSv/h)	Cs doosivõimsus (nSv/h)
Harju(10)	19	4
Hiiu(2)	14	2
Ida-Viru(17)	22	21
Jõgeva(5)	34	1
Järva(2)	29	5
Lääne(5)	16	4
Lääne-Viru(8)	23	9
Põlva(5)	22	5
Pärnu(8)	24	2
Rapla(3)	24	4
Saare(14)	23	3
Tartu(8)	30	1
Valga(3)	24	1
Viljandi(6)	26	2
Võru(6)	23	2
Petseri(6)	26	2

Tabel 3.1: K-40 ja Cs doosivõimsused

Cs-134 ja Cs-137 eriaktiivsuste võrdlusest. [9]

Ülaltoodud tulemused näitavad selgelt, et Ida- ja Lääne-Virumaa proovid on ülejäänud Eesti omadest suurema tseesiumi aktiivsusega. Samal ajal on Jõgeva-, Tartu- ja Valgamaa pinnaste doosivõimsused väikseimad Eestis. K-40 doosivõimsuste puhul on näha peaaegu vastupidist olukorda, sest Jõgeva- ja Tartumaa proovide põhjal arvatud doosivõimsused on suurimad Eestis. [9]

Peatükk 4

Meetodid

4.1 Liiva kogumine

Selle töö jaoks analüüsitud liivaproovid koguti erinevatest kohtadest üle Eesti. Kõige suurem hulk proove pärineb Kihnu saarelt ja Peipsi lähistelt, aga proove koguti ka Edela- ja Loode-Eestist. Proovivõtukohtade koordinaatide määramiseks kasutati seadmeid Garmin Colorado 300 ja Magellan 300. Kõik antud töö jaoks olulised proovivõtukohad on kujutatud joonisel 4.1 kollaselt.



Joonis 4.1: Liivaproovide võtmise kohad. Kaart: Google.

Üldiselt koguti liiv maapinna pinnakihist. Erinevatest kohtadest kogutud liiv hoiustati erinevates

kilekottides. Kilekottide peale märgiti proovide võtmise aeg ning koht, et neid hiljem eristada saaks.

4.2 Proovide ettevalmistamine

Selleks, et valmistada liiva ette mõõtmiste teostamiseks, läbiti järgnevad sammud: liiva sõelumine ja erinevate liivafraktsioonide üksteisest eraldamine, liiva mõõtepurkidesse valamine ja kaalumine ning mõõtepurkide sulgemine ja tihendamine plastiliini ja teibiga.

Väga jämedad terad eraldati liivast sõelaga, mille ristkülikukujuliste aukude küljepikkuseks oli umbes 2,5 mm. Liiva edasiseks sõelumiseks ning peenemate fraktsioonide eraldamiseks kasutati vibratsioonimasinat Retsch Vibratory Sieve Shaker AS200 Basic. Masinas oli üksteise kohal kuus Retsch sõela ning igas sõelas olid ristkülikukujulised augud lineaardimensioonidega vastavalt 38 μm , 75 μm , 106 μm , 150 μm , 250 μm ja 500 μm . Sõelad asetsesid masinas üksteise kohal aukude suuruse järjekorras. Seega kukkusid kõige peenemad terad kõigist sõeladest läbi, samas kui kõige suuremad terad jäid esimese sõela peale. Ülejäänud terad jäid vahepealsetele sõeladele.

Sõelumiseks avati ülemine sõel ning sellele valati sõelutav liiv. Seejärel keerati sõeluja jälle kinni ning käivitati vähemalt kümneks minutiks. Kui vibratsioonimasin oli lõpetanud sõelumise, võeti sõelad sellelt maha ning valati sõelal olnud liiv selleks ettenähtud ja vastavalt märgistatud kilekottidesse. Igas kotis olev liiv kaaluti. Iga liiva puhul jäeti osa sõelumata. Sõelumata osast valmisid hiljem integraalsed proovid, milles sisaldasid kõik liivafraktsioonid (fraktsioone nendest ei eraldatud).

Kui mingit kindlat liivafraktsiooni oli piisavalt, et täita 57 cm³ metallist mõõtepurk, siis täideti see ääreni. See oli oluline, et tagada kõigi täisproovide puhul sama geomeetria. Kui mõõtepurgi täis valamiseks polnud piisavalt liiva, siis jäeti purk pooltäis, ning tehti purgi kaanele märke, et antud proov on poolik. Kuigi lõplikku töösse poolikute proovide mõõtmisandmeid sisse ei võetud, oli sellise märgendamise eesmärgiks nende proovide täisväärtuslikkuse kindlustamine pooltäis geomeetriaga usaldusväärsete kalibratsiooniproovide olemasolul.

Suletud proovipurgid tihendati plastiliiniga, et minimeerida radooni väljumist purgist. Plastiliin kanti purgi ja kaane prao vahele. Et vältida plastiliini mahakoorumist, kaeti see teibiga. Pärast seda jäeti proovid seisma vähemalt 3 nädalaks, et võimaldada sekulaarse tasakaalu tekkimist.

4.3 Proovide mõõtmine

Proovid seisisid nii kaua, et nendes võis eeldada sekulaarse tasakaalu olemasolu. Proovide mõõtmiseks kasutati spektromeetreid BSI GCD-50200 ja EG&G ORTEC GEM-35200.

Üldjuhul mõõdeti proove umbes 24 tundi. Mõningaid kõrge aktiivsusega proove mõõdeti ka lühema aja jooksul ning mõningaid väga madala aktiivsusega proove pikema aja jooksul. Viimaste hulka kuulusid näiteks tühjad proovid taustkiirguse määramiseks. Mõõtmisaja täpsus oli 1 sekund. Pärast mõõtmist salvestati tulemused spektrifaili. Spektrifailide analüüsimiseks kasutati Cambio 4.0 120822 tarkvara. Selle abil määrati Ba-137m gammalagunemisele vastava 661 keV piigi ja K-40 gammalagunemisele vastava 1,46 MeV piigi pindalad ehk lugemite arvud. Nendest lugemite arvudest lahutati maha foon.

Et määrata proovide aktiivsusi ja aktiivsuse kontsentratsioone, oli vaja teada detektorite efektiivsusi antud energiate ja proovide geomeetria juures. Efektiivsuste määramiseks kasutati kalibratsiooniproove, mis valmistati kalibratsioonimaterjalidest IAEA-RGK-1, IAEA-375 SOIL ja CBSS-2 [10, 11].

4.4 Aktiivsuse kontsentratsioonide leidmine

Proovide aktiivsuse kontsentratsioonide leidmiseks kasutati valemit

$$A = \frac{\frac{N}{t} - \frac{N_{foon}}{t_{foon}}}{m\varepsilon_p},$$

kus

A on antud ühepiigilise gammaspektriga nukliidi aktiivsuse kontsentratsioon,

N on antud nukliidi gammaspektri piigi pindala ehk sellesse piiki jäävate lugemite arv,

t on mõõtmise kestus,

N_{foon} on antud nukliidi gammaspektri piigi pindala foonis,

t_{foon} on fooni mõõtmise kestus,

A_b on fooni antud nukliidi gammapiigi energia juures,

m on proovi mass ja

ε_p on detektori efektiivsus antud energia ning proovi geomeetria juures.

Kuna Cs-137 gammapiiki labori foonis ei leidunud, siis oli Cs-137 aktiivsuse kontsentratsioonide leidmise jaoks fooni komponent ülaltoodud valemis null.

4.5 Radioaktiivse proovi aktiivsuse kontsentratsiooni muutumine ajas

Radioaktiivse proovi aktiivsuse kontsentratsiooni sõltuvust ajast saab avaldada järgnevalt:

$$A = A_0 e^{-\lambda t},$$

kus

A on antud proovi aktiivsuse kontsentratsioon ajahetkel t ,

A_0 on proovi aktiivsuse kontsentratsioon ajahetkel $t = 0$,

$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{half}}$ on lagunemiskonstant,

T_{half} on antud nukliidi poolestusaeg ja

t on proovi esialgsest aktiivsuse mõõtmisest möödunud aeg

Antud olukorras on mugav avaldada A järgnevalt:

$$A = A_0 e^{-\frac{\ln 2}{T_{half}} t}.$$

Kalibratsiooniproovide aktiivsuse kontsentratsioonide arvutamiseks kasutati ülaltoodud valemit. Proovide aktiivsuse kontsentratsioonide taandamiseks mingile mõõtmiskuupäevale eelnevale kuupäevale saab avaldada eelnevast seosest A_0 .

$$A_0 = A e^{\frac{\ln 2}{T_{half}} t} = A \cdot 2^{\frac{t}{T_{half}}}$$

4.6 Mõõtemääramatused

Proovide aktiivsuse kontsentratsioonide mõõtemääramatuste arvutamiseks kasutati Cambio tarkvara poolt spektri analüüsimisel saadavaid lugemite arvu standardhälvete hinnanguid. Kalibratsiooniproovide aktiivsuse kontsentratsioonide suhtelised standardhälbed olid kõik alla 1% ja seega nende määramatusi proovide mõõtemääramatuste arvutamisel arvesse ei võetud. Proovide aktiivsuse kontsentratsioonide standardhälvete leidmiseks kasutati seost

$$\sigma_A = \frac{\frac{\sigma_N}{t} + \sigma_{foon}}{m\varepsilon_P},$$

kus

σ_A on proovi aktiivsuse kontsentratsiooni standardhälve,

σ_N on proovi lugemite arvu standardhälve antud energia juures,

σ_{foon} on fooni aktiivsuse standardhälve antud energia juures,

ε_P on detektori efektiivsus antud energia ja geomeetria juures,

m on proovi mass ja

t on proovi mõõtmise kestus.

Kuna Cs-137 aktiivsust foonis polnud, siis võeti Cs-137 aktiivsuse kontsentratsioonide standardhälvete leidmise puhul fooni standardhällbeks 0.

Cs-137 ja K-40 aktiivsuse kontsentratsioonide suhte standardhälvete leidmise puhul kasutati jagatise mõõtemääramatuse leidmise reeglit [12]

$$\sigma_{suhe} = \frac{\sigma_K}{A_K} + \frac{\sigma_{Cs}}{A_{Cs}}.$$

4.7 Kalibratsioon

Ükski gammaspektromeeter ei suuda avastada absoluutselt kõiki footoneid, mis eralduvad mõõdetavast proovist. Seetõttu on vaja mõõtmistulemuste kalibreerimisel arvestada detektori efektiivsusega. Gammadetektori efektiivsus on energiale E vastavas piigis olevate lugemite arvu ja proovist lähtuvate energiaga E footonite suhe. Efektiivsus sõltub konkreetsest detektorist, energiast E ning proovi geomeetriast. [13]

Detektori efektiivsuse saab avaldada järgnevalt:

$$\varepsilon_P(E) = \frac{N_P(E)}{F(E)}.$$

Ülalolevas valemis on $\varepsilon_P(E)$ detektori efektiivsus energia E juures, $N_P(E)$ lugemite arv energia E juures ning $F(E)$ proovist väljuvate energiaga E footonite arv. Efektiivsuse leidmiseks

mõõdeti kalibratsiooniproovide $N_P(E)$ väärtused nii Cs-137 kui K-40 gammapektri piikide kohta. Lisaks arvutati $F(E)$ väärtused kasutades kalibratsioonimaterjalide passe. [13]

Cs-137 mõõtmiste kalibreerimiseks oli lisaks vaja ka arvesse võtta Cs-137 lagunemist kalibratsioonimaterjalis. Selleks kasutati ülaltoodud valemit. IAEA-375 SOIL materjali vanus oli mõõtmise hetkel 8883 päeva ning CBSS-2 materjali puhul oli see vanus 832 päeva. Arvestades, et Cs-137 poolestusaeg on umbes 30 aastat [4] ja kalibratsioonimaterjalid olid juba aastaid seisnud, tähendas see, et kalibratsioonimaterjalide aktiivsus oli aja jooksul arvestatavalt vähenenud. K-40 mõõtmiste kalibreerimise puhul K-40 aktiivsuse vähenemist proovi vananemisel arvesse ei võetud, sest kalibratsiooniproovide vanus oli tühine võrreldes K-40 1,25 miljardi aasta pikkuse poolestusajaga [7].

Proovide kalibreerimiseks arvutati detektori efektiivsused mõlema detektori jaoks nii K-40 kui Cs-137 tütar nukliidi Ba-137m gammapiikide juures.

Isotoop	Detektor	Kalibratsioonimaterjal	Arvutatud efektiivsus	Efektiivsuse suhteline σ
Cs-137	BSI	CBSS-2	0.0249	0,30 %
Cs-137	ORTEC	375 SOIL	0.0247	0,94 %
K-40	BSI	RGK-1	0.00177	0,73 %
K-40	ORTEC	RGK-1	0.00167	0,90 %

Tabel 4.1: Detektorite efektiivsused

Tabelist 4.1 on näha, et kõigi efektiivsuste suhtelised standardhälbed olid alla 1%. Selle tõttu ei võetud neid standardhälbeid arvesse proovide endi standardhälvete arvutamisel. Mõlema detektori efektiivsused langevad võrdlemisi hästi kokku. Proovide geomeetria oli mõlema detektori puhul sama. BSI detektori puhul oli mõõtmise efektiivsus 661 keV energia juures 14,1 korda suurem kui 1,46 MeV energia juures. ORTEC detektori puhul oli see erinevus 14,8 korda.

Peatükk 5

Tulemused ja analüüs

Kõik Cs-137 aktiivsuse kontsentratsioonid on taandatud kuupäevale 1. jaanuar 2015. Mõne proovi puhul on märgitud Cs-137 aktiivsuse kontsentratsiooniks 0 Bq/kg. Sellisel juhul oli proovis Cs-137 gammapiik liiga väike, et seda foonist eraldada. Selliste proovide puhul pole toodud ka toodud Cs-137 aktiivsuse kontsentratsiooni standardhälvet. Proovide numbrid on ära toodud selleks, et eristada samast alast või piirkonnast võetud erinevaid proove. Selle töö jaoks ei mõõdetud kõiki võimalikke proove ning see väljendub ka proovi numbrites.

Tabelid 5.1 kuni 5.3 sisaldavad arvutatud aktiivsuse kontsentratsioone proovide kohta üle Eesti. Tabelis 5.1 on esitatud proovid erinevatest Eesti kohtadest. Tabelis 5.2 on informatsioon proovide kohta Kihnu saarelt. Tabelis 5.3 on informatsioon proovide kohta, mis pärinevad Lääne-Eestist.

Asukoht	Proov	Fraktsioon μm	$A_{Cs}(\frac{Bq}{kg})$	$\sigma_{A_{Cs}}(\frac{Bq}{kg})$	$A_K(\frac{Bq}{kg})$	$\sigma_{A_K}(\frac{Bq}{kg})$
Paralepa	1	int	0,998	1,667	154,56	7,16
Paralepa	1	>500	0,379	0,268	148,75	7,49
Kakumäe	1	>106	2,668	0,787	118,19	12,47
Kakumäe	1	>150	3,574	0,288	275,01	8,63
Kakumäe	2	>250	6,393	0,393	461,92	11,33
Peipsi Kauksi	5	int	2,165	0,400	172,13	9,06
Peipsi Kauksi	6	int	2,611	0,281	284,81	8,72
Peipsi Kauksi	6	>250	2,821	0,261	389,83	9,60
Peipsi Remniku	1	int	2,554	2,687	132,53	8,09
Peipsi Remniku	1	>150	2,009	0,475	61,11	6,57
Peipsi Remniku	1	>250	2,286	0,254	184,80	6,87
Peipsi Remniku	2	int	2,771	0,366	260,85	9,20
Peipsi Remniku	2	>125	2,767	0,464	228,25	10,37
Peipsi Ranna	7	int	1,894	0,316	675,58	11,16
Peipsi Ranna	7	>150	4,631	0,668	400,12	11,38
Peipsi Ranna	7	>250	1,883	0,355	620,07	12,09
Peipsi Ranna	7	>500	1,829	0,317	1175,97	15,70
Peipsi Alajõe	4	int	0,000	0,000	307,34	43,56
Peipsi Alajõe	4	>106	0,000	0,000	378,55	24,98
Peipsi Alajõe	4	>150	0,000	0,000	171,96	12,81
Peipsi Alajõe	4	>250	1,339	0,632	302,31	14,54
Peipsi Alajõe	4	>500	1,393	0,254	354,73	8,71
Peipsi Silla	3	int	3,022	0,173	141,88	4,85
Peipsi Silla	3	>125	5,035	0,907	88,97	62,21
Peipsi Silla	3	>250	2,824	0,277	145,75	7,11
Haversi	3	int	1,154	0,489	109,35	7,51
Haversi	3	>150	1,842	0,824	102,04	8,12
Haversi	3	>250	1,810	0,341	102,20	6,68
Paldiski Lõunasadama	2	int	3,247	0,328	79,72	6,55
Paldiski Lõunasadama	2	>150	8,718	0,485	243,29	8,81
Türisalu	1	>150	3,402	0,337	90,65	6,96
Türisalu	1	>250	2,707	0,290	103,00	6,39
Türisalu	1	>500	1,888	0,197	114,05	6,59
Türisalu	2	int	2,533	0,496	75,16	8,66
Türisalu	2	>150	2,731	0,597	57,49	6,82
Türisalu	2	>250	2,790	0,246	65,93	5,86
Türisalu	2	>500	1,936	0,261	111,45	6,38
Türisalu	3	int	2,207	0,461	54,66	7,21

Tabel 5.1: Erinevate Eesti proovide aktiivsuse kontsentratsioonid

Asukoht	Proov	Fraktsioon μm	$A_{Cs}(\frac{Bq}{kg})$	$\sigma_{A_{Cs}}(\frac{Bq}{kg})$	$A_K(\frac{Bq}{kg})$	$\sigma_{A_K}(\frac{Bq}{kg})$
Kihnu	2	int	1,258	0,276	344,13	9,96
Kihnu	4	int	0,000	0,000	201,90	39,73
Kihnu	4	>150	0,000	0,000	151,15	9,83
Kihnu	4	>250	0,000	0,000	184,28	13,30
Kihnu	4	>500	1,137	0,272	378,65	9,82
Kihnu	3	int	1,068	0,273	232,36	7,83
Kihnu	3	int	1,167	0,260	252,73	7,82
Kihnu	3	>150	0,000	0,000	23,32	8,16
Kihnu	3	>250	1,305	0,245	300,64	9,01
Kihnu	5	int	0,000	0,000	382,33	9,70
Kihnu	5	>150	0,000	0,000	316,95	8,46
Kihnu	5	>250	0,119	0,112	352,00	9,23
Kihnu	5	>500	0,000	0,000	454,07	9,84
Kihnu	6	int	2,910	0,330	398,26	10,31
Kihnu	6	>150	4,365	0,357	305,96	9,71
Kihnu	6	>250	2,848	0,329	399,10	10,50
Kihnu	6	>500	1,478	0,269	413,77	9,78
Kihnu	7	int	1,313	0,223	321,73	9,11
Kihnu	7	>150	0,587	2,377	266,87	12,60
Kihnu	7	>250	1,210	0,223	316,30	9,03
Kihnu	7	>500	0,611	0,298	361,86	9,94
Kihnu	8	int	0,000	0,000	196,55	27,94
Kihnu	8	int	1,254	0,241	311,46	8,82
Kihnu	8	>150	0,000	0,000	45,85	5,73
Kihnu	8	>250	2,421	0,741	495,13	12,24
Kihnu	8	>500	1,206	0,408	177,79	10,78
Kihnu	9	int	3,809	0,340	414,04	9,96
Kihnu Munalaiu	1	int	1,434	0,319	288,48	8,56
Kihnu Munalaiu	1	int	1,559	0,258	341,10	9,62

Tabel 5.2: Kihnu proovide aktiivsuse kontsentratsioonid

Asukoht	Proov	Fraktsioon μm	$A_{Cs}(\frac{Bq}{kg})$	$\sigma_{A_{Cs}}(\frac{Bq}{kg})$	$A_K(\frac{Bq}{kg})$	$\sigma_{A_K}(\frac{Bq}{kg})$
Audru jõe	1	int	2,249	0,347	410,33	10,27
Audru jõe	2	int	3,647	0,437	528,80	12,92
Valgeranna	3	>150	1,433	0,237	359,47	8,74
Valgeranna	5	int	1,410	0,227	293,26	7,49
Valgeranna	5	>150	1,351	0,251	267,88	8,13
Valgeranna	5	>250	1,302	0,210	311,82	8,94
Valgeranna	6	int	1,804	1,814	254,33	8,24
Valgeranna	6	>150	1,817	0,230	363,91	9,30
Valgeranna	6	>250	1,580	0,218	443,62	9,97
Valgeranna	7	int	0,000	0,000	427,40	7,84
Valgeranna	9	int (cerbo)	0,715	0,247	368,19	8,39
Valgeranna	9	int (met)	0,588	0,291	401,57	10,89
Valgeranna	10	int	1,164	0,408	303,01	8,73
Noarootsi Telise	2	int	1,682	0,204	111,58	6,39
Hiiumaa Luidja	1	int	3,379	0,319	298,89	8,72
Vormsi Borby 2	4	>250	1,546	0,222	56,15	5,30
Vormsi Borby 2	4	int	1,360	0,244	55,39	5,46

Tabel 5.3: Erinevat Lääne-Eesti proovide aktiivsuse kontsentratsioonid

Kõigi proovide aktiivsuse kontsentratsioonide aritmeetiliseks keskmiseks tuli Cs-137 jaoks 1,844 Bq/kg ning K-40 jaoks 271,78 Bq/kg. Artiklis [9] leitud keskmine K-40 aktiivsuse kontsentratsioon oli suurem, 513 Bq/kg. Tolles artiklis analüüsitud proove koguti ka Eesti sisemaalt ja selle tõttu oli ilmselt kaaliumväetiste mõju proovidele tunduvalt suurem. Käesolevas töös aga käsitleti vaid rannaliivasid ning need on põllumajanduslike kaaliumväetiste poolt vähem saastatud kui sisemaa mullad. Tulemustest järeldub, et Eesti rannaliivades on K-40 gammaaktiivsuse kontsentratsioonid tunduvalt suuremad Cs-137 gammaaktiivsuse kontsentratsioonidest.

Kõige suurem Cs-137 aktiivsus väärtusega 8,718 Bq/kg esines Paldiski Lõunasadama 150 - 250 μm terasuurusega fraktsioonis. Kõige suurem K-40 aktiivsus esines aga Peipsi Ranna > 500 μm terasuurusega fraktsioonis. Mõnedes Kihnu proovides ning ka Peipsi Alajõe proovides esines Cs-137 väga vähe.

Tabelisse 5.4 on kokku pandud kolme ülaloleva tabeli info jaotatuna erinevate piirkondade järgi. Cs-137 ja K-40 aktiivsuste väärtuste kohta on välja toodud nende aritmeetilised keskmised antud piirkondade integraalsetes proovides.

Toodud väärtused ei esinda tingimata nende piirkondade liivade keskmisi aktiivsuse kontsentratsioone - need on vaid antud integraalsete proovide hulga keskmised. Enamus piirkondade kohta oli proove vähe, seega ei saa nende piirkondade kohta antud andmete põhjal kindlaid järeldusi teha, kuigi mõned tendentsid võivad ilmned.

Asukoht	Int proove	Keskmine $A_{Cs}(\frac{Bq}{kg})$	Keskmine $A_K(\frac{Bq}{kg})$	Keskmine $\frac{A_{Cs}}{A_K}$
Paralepa	1	0,998	154,56	154,88
Peipsi	7	2,145	282,16	123,04
Haversi	1	1,154	109,35	94,74
Paldiski	1	3,247	79,72	24,55
Türisalu	2	2,370	64,91	27,22
Kihnu	12	1,314	307,09	207,41
Audru	2	2,948	469,57	163,72
Valgeranna	6	0,947	341,29	361,35
Noarootsi	1	1,682	111,58	66,34
Hiiumaa	1	3,379	298,89	88,46
Vormsi	1	1,360	55,39	40,73

Tabel 5.4: Proovide keskmised aktiivsuse kontsentratsioonid

Tabelis 5.4 olevatest tulemustest on olulisimad Peipsi, Kihnu ja Valgeranna proovide aktiivsuse kontsentratsioonid, sest nende puhul oli analüüsitud proove oluliselt rohkem kui teiste piirkondade puhul. Neist kolmest on Peipsi proovides kõrgeim Cs-137 aktiivsuse kontsentratsioon, aga madalaim K-40 aktiivsuse kontsentratsioon (vastavalt 2,145 Bq/kg ja 282,16 Bq/kg). Sellest tulenevalt on seal kolmest eelnevalt mainitud kohast väikseim keskmine aktiivsuse kontsentratsioonide suhe.

Tabelis 5.4 esitatud andmetest järeldeb, et Ida-Eestisse on ladestunud suurem kontsentratsioon Cs-137 kui mujale Eestisse. See on kooskõlas varemavaldatud tulemustega [9]. Nendest tabelitest järeldeb ka see, et Tšernobõlist tulnud radioaktiivne tolmu ladestus geograafiliselt väga ebaühtlaselt. Põhjuseks võib pidada seda, et tolmu ladestus põhiliselt nendesse kohtadesse, kuhu see sademetega maha sadas. Tabelis 5.5 on esitatud antud proovide keskmised aktiivsuse kontsentratsioonid ning nende suhted Eesti osade kaupa.

Piirkond	Int proove	Keskmine $A_{Cs}(\frac{Bq}{kg})$	Keskmine $A_K(\frac{Bq}{kg})$	Keskmine $\frac{A_{Cs}}{A_K}$
Loode-Eesti	8	2,070	117,41	65,52
Edela-Eesti	20	1,367	333,60	249,22
Ida-Eesti	7	2,145	282,16	123,04

Tabel 5.5: Keskmised aktiivsuse kontsentratsioonid Eesti osade kaupa

Tabelites 5.6 kuni 5.8 on toodud K-40 ja Cs-137 aktiivsuse kontsentratsioonide suhted koos standardhälvetega.

Asukoht	Proov	Fraktsioon μm	$\frac{A_{Cs}}{A_K}$	σ
Paralepa	1	int	154,88	265,90
Paralepa	1	>500	392,27	297,23
Kakumäe	1	>106	44,30	17,74
Kakumäe	1	>150	76,95	8,62
Kakumäe	2	>250	72,25	6,21
Peipsi Kauksi	5	int	79,49	18,85
Peipsi Kauksi 2	6	int	109,10	15,08
Peipsi Kauksi 2	6	>250	138,17	16,17
Peipsi Remniku	1	int	51,89	57,75
Peipsi Remniku	1	>150	30,43	10,47
Peipsi Remniku	1	>250	80,83	11,99
Peipsi Remniku	2	int	94,15	15,75
Peipsi Remniku	2	>125	82,51	17,57
Peipsi ranna	7	int	356,66	65,31
Peipsi ranna	7	>150	86,41	14,93
Peipsi ranna	7	>250	329,34	68,47
Peipsi ranna	7	>500	643,07	120,01
Peipsi alajõe	4	int		
Peipsi alajõe	4	>106		
Peipsi alajõe	4	>150		
Peipsi alajõe	4	>250	225,74	117,47
Peipsi alajõe	4	>500	254,69	52,75
Peipsi silla	3	int	46,94	4,30
Peipsi silla	3	>125	17,67	15,54
Peipsi silla	3	>250	51,62	7,58
Haversi	3	int	94,74	46,67
Haversi	3	>150	55,38	29,18
Haversi	3	>250	56,47	14,32
Paldiski lõunasadama	2	int	24,55	4,49
Paldiski lõunasadama	2	>150	27,91	2,56
Türisalu	1	>150	26,64	4,69
Türisalu	1	>250	38,06	6,44
Türisalu	1	>500	60,40	9,80
Türisalu	2	int	29,67	9,23
Türisalu	2	>150	21,05	7,10
Türisalu	2	>250	23,64	4,18
Türisalu	2	>500	57,56	11,05
Türisalu	3	int	24,77	8,44

Tabel 5.6: Proovide aktiivsuse kontsentratsioonide suhted

Asukoht	Proov	Fraktsioon μm	$\frac{A_{Cs}}{A_K}$	σ
Kihnu	2	int	273,56	67,93
Kihnu	4	int		
Kihnu	4	>150		
Kihnu	4	>250		
Kihnu	4	>500	333,07	88,37
Kihnu	3	int	217,63	63,02
Kihnu	3	int	216,58	54,96
Kihnu	3	>150		
Kihnu	3	>250	230,43	50,26
Kihnu	5	int		
Kihnu	5	>150		
Kihnu	5	>250	2955,00	2863,61
Kihnu	5	>500		
Kihnu	6	int	136,86	19,06
Kihnu	6	>150	70,09	7,95
Kihnu	6	>250	140,15	19,87
Kihnu	6	>500	280,00	57,50
Kihnu	7	int	244,99	48,57
Kihnu	7	>150	454,49	1861,28
Kihnu	7	>250	261,41	55,54
Kihnu	7	>500	592,33	305,26
Kihnu	8	int		
Kihnu	8	int	248,41	54,79
Kihnu	8	>150		
Kihnu	8	>250	204,48	67,66
Kihnu	8	>500	147,38	58,73
Kihnu	9	int	108,69	12,31
Kihnu Munalaiu	1	int	201,17	50,68
Kihnu Munalaiu	1	int	218,79	42,32

Tabel 5.7: Proovide aktiivsuse kontsentratsioonide suhted

Tabel 5.9 võrdleb proovide gammaaktiivsuste kontsentratsioone Cs-137 ja K-40 gammajoonte juures kolme liivafraktsiooni puhul: suurem kui 150 μm , suurem kui 250 μm ja suurem kui 500 μm . Andmete täielikkuse huvides võeti seda tabelit koostades arvesse vaid proovide kolmikud ehk selles andmed ainult sellistest proovidest, millest oli infot kõigi kolme huvipakkuva terasuuruse kohta.

Asukoht	Proov	Fraktsioon μm	$\frac{A_{Cs}}{A_K}$	σ
Audru jõe	1	int	182,44	32,68
Audru jõe	2	int	144,99	20,90
Valgeranna	3	>150	250,77	47,62
Valgeranna	5	int	208,05	38,87
Valgeranna	5	>150	198,35	42,93
Valgeranna	5	>250	239,48	45,52
Valgeranna	6	int	140,95	146,29
Valgeranna	6	>150	200,31	30,52
Valgeranna	6	>250	280,72	44,95
Valgeranna	7	int		
Valgeranna	9	int (cerbo)	514,73	189,73
Valgeranna	9	int (met)	682,63	356,50
Valgeranna	10	int	260,38	98,76
Noarootsi Telise	2	int	66,34	11,84
Hiumaa Luidja	1	int	88,46	10,93
Vormsi Borby 2	4	>250	36,32	8,65
Vormsi Borby 2	4	int	40,73	11,33

Tabel 5.8: Proovide aktiivsuse kontsentratsioonide suhted

Liivafraktsioon	Keskmine $A_{Cs}(\frac{Bq}{kg})$	Keskmine $A_K(\frac{Bq}{kg})$
>150 μm	1,746	214,55
>250 μm	1,702	341,89
>500 μm	1,275	428,54

Tabel 5.9: Proovide kolmikute keskmised aktiivsuse kontsentratsioonid terasuuruste kaupa

Tabeli 5.9 põhjal võib väita, et uuritud liivades eksisteerib korrelatsioon terasuuruse ja K-40 sisalduse vahel. Tabelis 5.10 on toodud keskmised aktiivsuse kontsentratsioonid fraktsioonide kaupa kõigi proovide kohta. Võrreldes tabeliga 5.9 on tabelis 5.10 leitud aritmeetilised keskmised leitud suurema hulga proovide pealt, sest siin ei piira arvesse võetavate proovide hulka kolmikus olemise nõue. Seetõttu on võrdluseks lisatud ka integraalsete proovide keskmine.

Liivafraktsioon	Keskmine $A_{Cs}(\frac{Bq}{kg})$	Keskmine $A_K(\frac{Bq}{kg})$
int	1,684	273,90
>150 μm	2,145	206,06
>250 μm	2,066	290,83
>500 μm	1,186	369,11

Tabel 5.10: Kõigi proovide keskmised aktiivsuse kontsentratsioonid terasuuruste kaupa

Peatükk 6

Tänuavaldused

Bakalaureusetöö autor soovib avaldada tänu Rein Kochile juhendamise eest ning Rein Kochile ja Johanna-Iisabel Järvelillele proovide kokkupanemiseks kasutatud liiva kogumise eest.

Cs-137 ja K-40 aktiivsuse kontsentratsioonide määramine Eesti rannaliivades gammasepektromeetria abil

Lauri Kongas

Kokkuvõte

Käesoleva lõputöö eesmärk oli määrata radioaktiivsete isotoopide Cs-137 ja K-40 gammalagunemise aktiivsuste kontsentratsioonid Eesti rannaliivades. Liiva koguti erinevatest Eesti kohtadest, et saaks liivade aktiivsuste kontsentratsioone võrrelda geograafiliste kohtade lõikes. Kogutud liivast eraldati sõelumise teel erinevate terasuurustega liivafraktsioonid, et oleks võimalik võrrelda käsitletavate nukliidide esinemist erineva terasuurusega fraktsioonides. Liivast pandi kokku mõõteproovid. Proove mõõdeti gammasepektromeetritega ning saadud spektrifaile analüüsiti. Saadud tulemustest arvutati välja erinevate proovide Cs-137 ja K-40 aktiivsuste kontsentratsioonid ning leiti nende keskmised väärtused erinevate liivafraktsioonide ja proovivõtukohtade järgi.

Antud töö tulemused näitasid, et Eestis olid K-40 gammaaktiivsuse kontsentratsioonid oluliselt suuremad kui Cs-137 gammaaktiivsuse kontsentratsioonid. Lisaks näitasid need, et Ida-Eesti rannaliivades olid Cs-137 kontsentratsioonid üldjuhul kõrgemad kui mujal Eestis ja et Cs-137 oli Eestis jaotunud ebaühtlaselt. Lisaks järeldus töö tulemustest, et jämedate ($> 150 \mu m$) liivafraktsioonide puhul esines terasuuruse ja K-40 aktiivsuse kontsentratsioonide vahel negatiivne korrelatsioon.

Determination of the activity concentrations of Cs-137 and K-40 in Estonian beach sands using gamma spectrometry

Lauri Kongas

Summary

The aim of this thesis was to determine the gamma activity concentrations of radioactive isotopes Cs-137 and K-40 in Estonian beach sands. Sand was gathered from various Estonian beaches to allow for comparisons between the activity concentrations of sands from different geographical locations. Sieving was used to separate sand into fractions with different grain sizes. Samples were measured using gamma spectrometers and obtained spectrum files were analyzed. Data obtained from spectrum file analysis was used to calculate the activity concentrations of Cs-137 and K-40 in the samples.

The results of the given work showed that the gamma activity concentrations of K-40 were significantly higher than the gamma activity concentrations of Cs-137 in Estonian beach sands. Results also showed that Cs-137 concentrations were generally higher in Eastern Estonian beach sands compared to beach sands in other parts of Estonia and that Cs-137 was distributed fairly non-uniformly in Estonia. In addition, the results of this thesis suggest that there existed a negative correlation between grain sizes and activity concentrations of K-40 in coarse sand fractions ($> 150 \mu m$).

Viited

- 1 - UNSCEAR, Ionizing Radiation. "Sources and Biological Effects." United Nations, New York 19 (1982).
- 2 - Anspaugh, Lynn R., Robert J. Catlin, and Marvin Goldman. "The global impact of the Chernobyl reactor accident." *Science* 242.4885 (1988): 1513.
- 3 - Yasunari, Teppei J., et al. "Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident." *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108.49 (2011): 19530-19534.
- 4 - Laboratoire National Henri Becquerel. "Table de Radionucléides" http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Cs-137_tables.pdf
- 5 - Laboratoire National Henri Becquerel. "Table de Radionucléides" http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ba-137m_tables.pdf
- 6 - Metivier, Henri. "Chernobyl: Assessment of Radiological and Health Impacts." *Chernobyl: Assessment of Radiological and Health Impacts* (2002).
- 7 - Laboratoire National Henri Becquerel. "Table de Radionucléides" http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/K-40_tables.pdf
- 8 - Artna-Cohen, Agda. "Nuclear data sheets for A= 228." *Nuclear Data Sheets* 80.3 (1997): 723-786.
- 9 - J. Jõgi, R. Koch, K. Realo, E. Realo. "Radionukliidid Eesti pinnases ja kiirgusdoos". *Tehnika ja Tootmine* nr 8 (1994)
- 10 - IAEA. Reference Sheet https://nucleus.iaea.org/rpst/Documents/rs_iaea-375.pdf
- 11 - IAEA. IAEA-RGK-1, Potassium Sulfate <https://nucleus.iaea.org/rpst/referenceproducts/referencem>
- 12 - Alexander, J. "Basic Rules for Uncertainty Calculations" <http://web.uvic.ca/jalexandr/192UncertRules.pdf>
- 13 - Marie-Christine Lépy. Detection efficiency http://www.nucleide.org/ICRM_GSWG/Training/Efficiency

Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks

Mina, Lauri Kongas,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) enda loodud teose

**Cs-137 ja K-40 aktiivsuse kontsentratsioonide määramine Eesti rannaliivades
gammasepektromeetria abil,**

mille juhendaja on Rein Koch, PhD,

- (a) reprodutseerimiseks säilitamise ja üldsusele kättesaadavaks tegemise eesmärgil, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace-is lisamise eesmärgil kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni;
 - (b) üldsusele kättesaadavaks tegemiseks Tartu Ülikooli veebikeskkonna kaudu, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace'i kaudu kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni.
2. olen teadlik, et punktis 1 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.
 3. kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei rikuta teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse seadusest tulenevaid õigusi.

Tartu, 26. mai 2017. a.